



ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ,
ПАТЕНТАМ И ТОВАРНЫМ ЗНАКАМ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(21), (22) Заявка: 2005122795/28, 18.07.2005

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
18.07.2005

(45) Опубликовано: 27.11.2006 Бюл. № 33

(56) Список документов, цитированных в отчете о
поиске: ТДЛ-500К, ТУ 2655-006-02069208-95. RU
2229145 C1, 20.05.2004. SU 993728 A,
15.12.1984. SU 646706 A, 30.04.1980.

Адрес для переписки:

620002, г.Екатеринбург, ул. Мира, 19, Центр
интеллектуальной собственности, ГОУ ВПО
УГТУ-УПИ

(72) Автор(ы):

Кортов Всеволод Семенович (RU),
Мильман Игорь Игоревич (RU),
Никифоров Сергей Владимирович (RU),
Моисейкин Евгений Витальевич (RU)

(73) Патентообладатель(и):

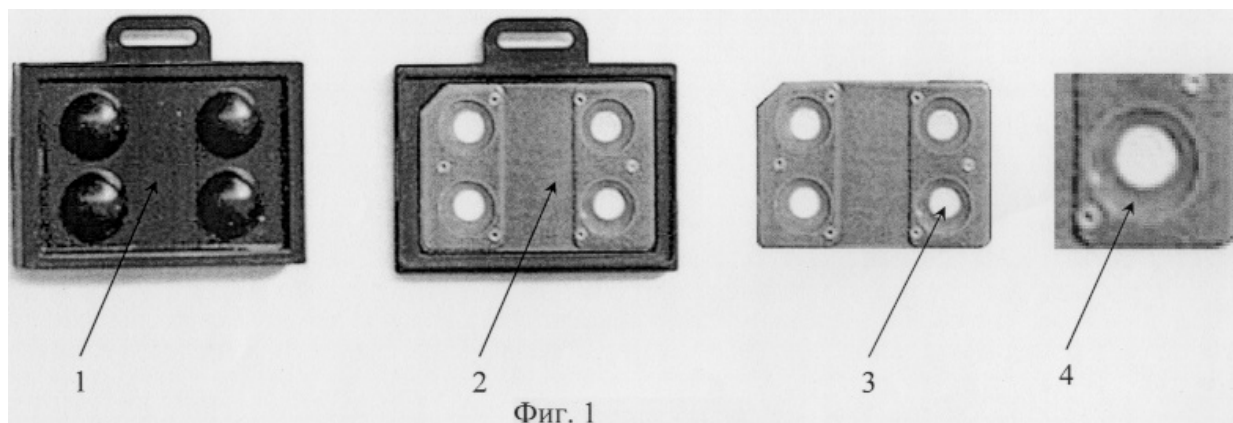
Государственное образовательное учреждение
высшего профессионального образования
"Уральский государственный технический
университет-УПИ" (RU)

(54) СПОСОБ ТЕРМОЛУЧЕВОЙ ПОДГОТОВКИ К ЭКСПОЗИЦИЯМ ТЕРМОЛЮМИНЕСЦЕНТНЫХ ДЕТЕКТОРОВ ИОНИЗИРУЮЩИХ ИЗЛУЧЕНИЙ НА ОСНОВЕ ОКСИДА АЛЮМИНИЯ

(57) Реферат:

Использование: для подготовки к рабочим
экспозициям термолюминесцентных детекторов
ионизирующего излучения, запаянных в
политетрафторэтиленовую пленку. Технический
результат изобретения: стабилизация
чувствительности детекторов к регистрируемому
излучению в процессе их эксплуатации, продление

ресурса эксплуатации дозиметров радиационных
излучений. Сущность: способ включает облучение
детекторов при комнатной температуре оптическим
излучением мощностью 15-1 мВт в диапазоне длин
волн 420-570 нм в течение 5-35 минут, после чего
их нагревают до температуры 300-320°C и
выдерживают при этой температуре 1-2 минуты. 8
ил.



Фиг. 1



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY,
PATENTS AND TRADEMARKS

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(21), (22) Application: **2005122795/28, 18.07.2005**

(24) Effective date for property rights: **18.07.2005**

(45) Date of publication: **27.11.2006 Bull. 33**

Mail address:

**620002, g.Ekaterinburg, ul. Mira, 19, Tsentr
intellektual'noj sobstvennosti, GOU VPO UGTU-UPI**

(72) Inventor(s):

**Kortov Vsevolod Semenovich (RU),
Mil'man Igor' Igorevich (RU),
Nikiforov Sergej Vladimirovich (RU),
Moisejkin Evgenij Vital'evich (RU)**

(73) Proprietor(s):

**Gosudarstvennoe obrazovatel'noe uchrezhdenie
vysshego professional'nogo obrazovanija
"Ural'skij gosudarstvennyj tekhnicheskij
universitet-UPI" (RU)**

(54) **RADIANT TREATMENT METHOD FOR PREPARING ALUMINA-BASED THERMOLUMINESCENT
IONIZING RADIATION DETECTORS TO EXPOSURE**

(57) Abstract:

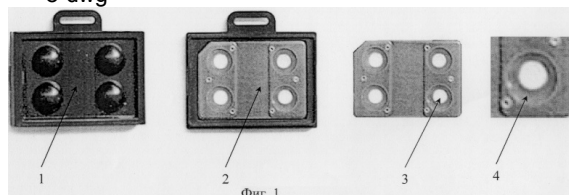
FIELD: measurement technology.

SUBSTANCE: method involves irradiating detectors with optical radiation having power of 15-1 mW in bandwidth of 420-570 nm at room temperature during 5-35 min. Next, the detectors are heated to 300-320°C and held at this temperature during 1-2 min.

EFFECT: stabilized detector sensitivity to

radiation under recording; prolonged service life.

8 dwg



Изобретение относится к способу обработки твердотельных детекторов ионизирующих излучений, основанных на явлении термостимулированной люминесценции (ТЛ). Оно может быть использовано в термолюминесцентной дозиметрии (ТЛД) для увеличения срока службы детекторов и сохранения их чувствительности на постоянном уровне при подготовке детекторов к экспозиции для устранения ТЛ-сигналов, не связанных с контролируемым облучением.

В настоящее время в отечественной и зарубежной практике получили широкое распространение термолюминесцентные детекторы на основе анион-дефектных монокристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, имеющие коммерческое обозначение ТЛД-500К (ТУ 2655-006-02069208-95); Дозиметрический контроль внешнего профессионального облучения. Общие требования. Методические указания МУ 2.6.1.25-2000. Москва, 2000, с.50; Dosimeter Materials, Harshow TLD Model 8800, Bicron Ne, рекламный проспект).

На Фиг.1 приведена реальная конструкции современных дозиметров, используемых в большинстве ТЛД автоматизированных систем, состоящая из пластмассового корпуса (1), внутри которого располагается металлическая рамка (2) с четырьмя отверстиями, в центре которых размещены детекторы (3), запаянные в тонкую, толщиной 20-40 мкм политетрафторэтиленовую пленку (4). Для регистрации ТЛ рамка извлекается из корпуса и помещается в измерительное устройство, в котором каждый детектор приводится в тепловой контакт с нагревателем через пленку, одновременно прозрачную для испускаемого света, регистрируемого фотоприемником. Такая конструкция позволяет жестко фиксировать детекторы по месту, производить их нагрев и регистрировать сигнал ТЛ. Термостойкость политетрафторэтиленовой пленки не позволяет нагревать детекторы до температуры выше 350°C.

Как правило, кривая термовысвечивания детекторов ТЛД-500К регистрируется в диапазоне 120-300°C, а особенностью этих детекторов является то, что отжиг при регистрации ТЛ для них является одновременно и подготовкой для следующей экспозиции.

Как показывает длительный опыт эксплуатации детекторов ТЛД-500К, со временем эксплуатации, т.е. с ростом числа циклов облучение - нагрев, индивидуальная чувствительность детекторов к излучению изменяется неконтролируемым образом, что приводит к существенному росту погрешности измерений.

Как показали проведенные нами исследования (Журнал прикладной спектроскопии. Т.71, №2, 227-230 (2004); Журнал прикладной спектроскопии. Том 72, №1, 140-142 (2005)), главной причиной изменения чувствительности детекторов в процессе их эксплуатации являются следующие процессы.

При нагреве кристалла в обычном режиме считывания дозиметрической информации носители, освобожденные с основной ловушки при 180°C, рекомбинируют с центрами свечения, вызывая люминесценцию кристалла. При этом часть освободившихся при нагреве носителей захватывается глубокой ловушкой и, следовательно, не участвует в создании сигнала ТЛ. От цикла к циклу облучение - нагрев, по мере эксплуатации детектора, концентрация носителей в глубокой ловушке накапливается, приближаясь к насыщению, и все большее их число, освободившееся при 180°C, участвует в ТЛ-процессе вместо захвата на глубокую ловушку. Таким образом, конкурирующее влияние захвата носителей на глубокую ловушку ($T_m=450^\circ\text{C}$), по сравнению с захватом их на центры люминесценции, падает. Это приводит к неконтролируемому росту чувствительности детектора к регистрируемому излучению и, как следствие, нелинейной зависимости выхода ТЛ от дозы излучения, появлению светочувствительности детекторов и, в итоге, к искажению дозиметрической информации. Аналогичные закономерности наблюдаются и у других люминофоров, используемых в термолюминесцентной дозиметрии, изготовленных из фтористого лития (ТЛД-400, ДТГ-4), бората магния (ТЛД-580).

В литературе описаны способы подготовки детекторов к эксплуатации, направленные на устранение изменений чувствительности ТЛД-детекторов, обусловленных их эксплуатацией. Физической основой этих способов является термически стимулированное

опустошение глубоких ловушек, практическая реализация заключается в применении специальных температурно-временных режимов обработки. Например, время отжига детекторов ТЛД-400 должно составлять (30 ± 5) минут при температуре $(400 \pm 5)^\circ\text{C}$, ТЛД-580 - (60 ± 5) минут при $(470 \pm 5)^\circ\text{C}$, ТЛД-500К - $(15-20)$ минут при $(800 \pm 30)^\circ\text{C}$ (Комплект дозиметров термолюминесцентных КДТ-021М1: «Техническое описание и инструкция по эксплуатации» ЖШ 1.287.909.ТО; Установка дозиметрическая термолюминесцентная ДВГ-02Т «Руководство по эксплуатации» ПИГУ.4362-002-08627804-98 РЭ, Москва, Санкт-Петербург, 2000 г.).

Из приведенных выше примеров следует, что известные способы термообработки ТЛД-детекторов позволяют скорректировать изменение их чувствительности за счет термически стимулированного опустошения глубоких ловушек.

Наиболее близким по технической сущности и достигаемому результату к предлагаемому следует считать способ температурно-временной обработки твердотельного детектора ионизирующих излучений на основе оксида алюминия ТЛД-500К $(15-20)$ минут при $800 \pm 30^\circ\text{C}$ по ТУ 2655-006-02069208-95), который и выбран в качестве прототипа.

Данный способ, включающий нагрев детекторов до 800°C , пригоден только для ТЛД-систем устаревшего типа, работающих с отдельными, не упакованными в пленку, детекторами. Однако он становится совершенно неприемлемым для большинства современных автоматизированных ТЛД-систем, использующих в составе своих дозиметров несколько детекторов, в том числе и для регистрации разных видов излучений, запаянных в политетрафторэтиленовую пленку (тефлон, фторпласт), температурная устойчивость которой не превышает 350°C . Выше этой температуры наблюдается плавление пленки и разрушение конструкции дозиметра. Таким образом, известный способ не позволяет устранить или снизить перечисленные выше факторы, отрицательно влияющие на служебные свойства детекторов, обусловленные заполнением глубоких ловушек в процессе их эксплуатации, и повысить тем самым надежность, точность и достоверность измерений.

Решение поставленной технической задачи достигается тем, что зафиксированные в ТЛ-карточке детекторы на основе оксида алюминия, запаянные в политетрафторэтиленовую пленку, облучают при комнатной температуре оптическим излучением мощностью 1-15 мВт в диапазоне длин волн 420-570 нм в течение 5-35 минут, после чего их нагревают до температуры $300-320^\circ\text{C}$ и выдерживают при этой температуре 1-2 минуты.

Нижняя граница мощности оптического излучения определяется необходимостью преодоления порогового значения, после которого начинается эффективное опустошение глубокой ловушки.

Верхняя граница мощности оптического излучения определяется тем, что при ее повышении эффективность опустошения глубокой ловушки достигает насыщения. Дальнейший рост мощности приводит к обратному эффекту, т.е. заполнению глубоких ловушек за счет фотоионизации неконтролируемых структурных и примесных дефектов, всегда присутствующих в реальных кристаллах.

Выбранный диапазон длин волн оптического излучения 420-570 нм обусловлен тем, что спектральная зависимость эффективности опустошения, как глубоких ловушек, так и основных дозиметрических носит экстремальный характер с максимумом вблизи 470 нм. Выше и ниже этого значения длины волны эффективность опустошения падает, что приводит либо к неполному опустошению глубокой и дозиметрической ловушек (при больших длинах волн), либо, напротив, к их заполнению (при более коротких длинах волн) за счет фотоионизации примесных и структурных дефектов.

Выбор временного интервала лучевой обработки детекторов связан с необходимостью опустошения глубокой ловушки до уровня, когда количество остающихся в ней носителей заряда не приводит к изменению чувствительности детектора и составляет величину 5-35 минут в зависимости от мощности источника оптического излучения.

Диапазон температур термообработки детекторов и временной выдержки, производимой

после лучевой обработки, обеспечивает полное опустошение дозиметрической ловушки и готовность детекторов к эксплуатации.

Сущность предлагаемого изобретения заключается в следующем.

В предлагаемом способе детекторы перед эксплуатацией облучаются при комнатной температуре оптическим излучением в спектральном диапазоне, соответствующем ионизации и опустошению одновременно дозиметрической и глубокой ловушек. Освобожденные при этом заряды из глубокой ловушки переселяются на основную дозиметрическую и более мелкие ловушки, при этом одновременно идет и процесс опустошения дозиметрической ловушки. Однако одна только лучевая обработка детекторов не обеспечивает полного опустошения дозиметрической ловушки. Для этого проводится последующая температурно-временная обработка, обеспечивая готовность детекторов (дозиметров) к дальнейшей эксплуатации.

В результате применения описанного способа сохраняется стабильность чувствительности детекторов в процессе эксплуатации, снижается их светочувствительность и, как следствие, растут точность, надежность и достоверность проводимых измерений. Применение предлагаемого способа, кроме того, повышает срок эксплуатации дозиметров, основу которых составляет ТЛ-карточка с запаянными в пленку детекторами. В этом случае оптическое опустошение дозиметрической ловушки можно использовать для детекторов с небольшим сроком эксплуатации и, следовательно, с таким уровнем заполнения глубоких ловушек, когда они еще не оказывают влияния на чувствительность, вместо обычного «обнуления» показаний путем термического отжига, проводимого перед очередным циклом экспозиции. Срок службы дозиметров в этом случае повышается за счет снижения количества нагревов, т.е. числа термоударов, испытываемых пленочным покрытием детекторов при нагреве их почти до критической температуры плавления.

Реализации предлагаемого способа термолучевой подготовки термолюминесцентного детектора ионизирующего излучения на основе анион-дефектного монокристаллического $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ типа ТЛД-500К к экспозициям обобщены и иллюстрируются представленными ниже фигурами.

1. Образцы и оборудование

Для проверки работоспособности предлагаемого метода использовались разработанные в УГТУ-УПИ образцы стандартных детекторов ТЛД-500К (АС №1072461, 1981 г.) на основе номинально чистых анион-дефектных монокристаллов $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, запаянных в политетрафторэтиленовую пленку (фиг.1), входящих в состав комплекта дозиметров автоматизированной ТЛД-системы «Сапфир-001», с помощью которой проводились все измерения ТЛ и термообработки. Для возбуждения ТЛ образцы облучались излучением $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ источника.

В качестве источника оптического излучения с непрерывным спектром использовались малогабаритная галогенная лампа КГМ-220-800-1, сочлененная с монохроматор МУМ, дискретного, в синей и зеленой области, - «сверхяркие», с силой света от 3500 до 5000 мкд, светоизлучающие диоды типа СДК-С469-5-10. Спектральный выход источников оптического излучения, необходимый для расчета времени экспозиции, определялся с помощью измерителя средней мощности и энергии лазерного излучения типа ИМО-2Н.

2. Принципы и методика реализации предлагаемого способа

2.1. Для иллюстрации факта изменения чувствительности в процессе эксплуатации детекторов глубокая ловушка плавно заполнялась в процессе опустошения основной при считывании ТЛ по стандартной методике, при нагреве до 300°C , за счет многократно повторяющихся циклов «облучение - измерение ТЛ», имитирующих реальные условия эксплуатации дозиметров. При этом степень заполнения глубоких ловушек косвенно контролировалась по изменению чувствительности детекторов (выход ТЛ при облучении тестовой дозой $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ источника), относительно исходного значения, до проведения циклов «облучение - нагрев». На Фиг.2 приведена зависимость выхода ТЛ (чувствительности), индуцированной небольшой тестовой дозой, от числа предварительно

проведенных циклов «облучение - нагрев». Видно из этого чертежа, что чувствительность детекторов плавно возрастает от цикла к циклу.

2.2. Для пояснения сути предлагаемого изобретения, основанного на оптически стимулированном опустошении глубоких ловушек, детекторы, глубокие ловушки в которых предварительно заполнялись в циклах «облучение - нагрев», после каждого из них, когда дозиметрические ловушки оказывались пустыми, освещались в течение заданного времени монохроматическим светом. Эффективность опустошения глубоких ловушек оценивалась по выходу ТЛ в основном пике, появление которой в этом случае было обусловлено зарядами, освобожденными из глубоких ловушек и захваченными энергетически более мелкими, в том числе и основными дозиметрическими (фототрансферная термолюминесценция (ФТТЛ)). Меняя время облучения, мощность и длину волны оптического излучения в месте расположения детектора, можно было регулировать эффективность опустошения глубокой ловушки, оцениваемую по выходу ФТТЛ. На Фиг.3 приведена зависимость выхода ФТТЛ в дозиметрическом пике при 180°C от числа циклов «облучение ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) - нагрев (измерение ТЛ)». Оптически стимулированное переселение зарядов производилось с помощью излучения светодиода с длиной волны 470 нм. Видно, что, действительно, в процессе эксплуатации детекторов на глубоких ловушках происходит запасание носителей заряда и что оптическая стимуляция способна осуществить освобождение этих зарядов, подобно тому, как это происходит при высокотемпературном нагреве.

3.2. Существование пороговой концентрации носителей в глубокой ловушке, выше значения которой повышение чувствительности детекторов ТЛД-500К приводит к появлению выраженного нелинейного участка на дозовой характеристике, иллюстрируется на Фиг.4 (кривая 1). Сама процедура измерения дозовой зависимости, «облучение - измерение ТЛ - облучение большей дозой - измерение ТЛ», инициирует процессы, происходящие при обычной эксплуатации детекторов, главным из которых является накопление зарядов на глубоких ловушках. Контроль чувствительности детекторов, проводимый в ходе измерения дозовой зависимости, показывает значительный рост чувствительности в диапазоне доз, соответствующих сверхлинейному выходу ТЛ (Фиг.4, кривая 2). Видно также из Фиг.4, что граница перехода от линейной области дозовой зависимости к нелинейной расположена вблизи доз облучения 200-300 мГр.

3.3. Для измерения спектра оптического опустошения ловушек, ответственных за дозиметрический ТЛ-пик при 450 К, детектор облучался β -излучением $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ источника тестовой дозой (около 0,1 Гр) и определялся выход термолюминесценции (ТЛ₀). Затем ТЛ-сигнал регистрировался после каждого цикла «облучение - освещение образца монохроматическим светом выбранной длиной волны (ТЛ_с)». Влияние спектрального состава фотостимуляции на опустошение дозиметрических ловушек рассчитывалось по изменению выхода ТЛ по формуле: $\% \text{ ТЛ} = [(ТЛ_0 - ТЛ_с) / ТЛ_0] \times 100$. Фотостимуляция производилась при фиксированной энергии светового потока. Зависимость падения выхода ТЛ от длины волны оптического излучения приведена на Фиг.5. Данные этого рисунка использованы для обоснования диапазона длин волн оптического излучения, используемого в предлагаемом изобретении.

3.4. На Фиг.6 приведены кривые термовысвечивания детекторов ТЛД-500К с предварительно опустошенной дозиметрической и заполненной глубокой ловушкой в зависимости от времени облучения оптическим излучением с длиной волны 470 нм. Видно, что оптическая стимуляция приводит к переселению зарядов из глубокой ловушки на более мелкие, ответственные за ТЛ-пики при 450 и 320 К. Запасенная в глубокой ловушке светосумма уменьшается с увеличением времени стимуляции, а в дозиметрической растет. Данные Фиг.6 получены при использовании экспериментальной установки для измерения ТЛ в широком интервале температур и детекторов без пленочного покрытия, поскольку диапазон термовысвечивания глубокой ловушки превышает температуру плавления политетрафторэтиленовой пленки. Из данных Фиг.6 следует необходимость опустошения дозиметрических ловушек перед эксплуатацией дозиметров после оптического

переселения носителей с глубоких ловушек на дозиметрические. Последующий нагрев до температуры 300-320°C и выдержки при этой температуре 1-2 минуты оказывается достаточным для полного устранения зарядов с дозиметрической ловушки.

3.5. Кинетика опустошения глубокой ловушки может наблюдаться не только по косвенным данным, таким как ТЛ в основном пике и изменение ее чувствительности, но и непосредственно в реальном времени с помощью оптически стимулированной люминесценции (ОСЛ). Суть этого явления заключается в том, что при оптически стимулированном опустошении глубокой ловушки не все носители переселяются на энергетически более мелкие ловушки, часть их участвует в рекомбинационных процессах, сопровождающихся люминесценцией в полосе свечения, равной 420 нм, подобно тому, как это происходит в случае термостимулированного освобождения зарядов с дозиметрической ловушки. На Фиг.7 приведена кривая затухания ОСЛ образцов детекторов с предварительно заполненными глубокими ловушками, обусловленная их опустошением. Видно, что при минимально используемой мощности оптического излучения, равной 1 мВт, требуется 35 минут для опустошения глубоких ловушек до уровня, когда их заселенность уже не оказывает влияния на чувствительность детекторов. С ростом мощности источника оптического излучения время опустошения глубокой ловушки сокращалось. При экспериментальной проверке предлагаемого способа это время составляло от 5 до 35 минут, если мощность оптического излучения в диапазоне длин волн 420-570 нм изменялась от 15 до 1 мВт соответственно.

3.6. Возможность замены термического отжига, проводимого для опустошения дозиметрических ловушек перед каждым новым циклом эксплуатации дозиметров, оптически стимулированным, иллюстрируется данными Фиг.8, которые представляют зависимость выхода ТЛ, запасенной в дозиметрическом пике при 450К от времени фотостимуляции и дозы предварительного облучения детекторов. Видно из этой фигуры, что за время 5-10 минут облучения оптическим излучением ТЛ-сигнал снижается практически до недетектируемого уровня. Это является дополнительным положительным эффектом применения, вытекающего из описанного способа, поскольку замена термического отжига обработкой оптическим излучением, продляет ресурс пленочной упаковки детекторов за счет снижения числа нагревов (термоударов) до температур, близких к порогу термоустойчивости пленочного покрытия.

Краткое описание чертежи

Фиг.1. Конструкции дозиметров, используемых в большинстве ТЛД автоматизированных системах. 1 - пластмассовый корпус; 2 - металлическая рамка с отверстиями (ТЛ-карточка); 3 - детекторы; 4 - политетрафторэтиленовая пленка.

Фиг.2. Рост выхода ТЛ, за счет повышения чувствительности, индуцированной небольшой тестовой дозой, от числа предварительно проведенных циклов облучение - нагрев.

Фиг.3. Зависимость выхода ФТТЛ в дозиметрическом пике при 180°C от числа циклов облучение ($^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$) - нагрев (измерение ТЛ). Оптически стимулированное переселение зарядов производилось с помощью излучения светодиода с длиной волны 470 нм.

Фиг.4. Фрагмент дозовой зависимости детекторов ТЛД-500К (1) и изменение их чувствительности (2), обусловленное циклами облучение - нагрев в процессе измерения.

Фиг.5. Спектр оптически индуцированного опустошения дозиметрических ловушек, полученный по данным «остаточной» ТЛ.

Фиг.6. Кривые термовысвечивания детекторов ТЛД-500К с предварительно опустошенной дозиметрической и заполненной глубокой ловушкой в зависимости от времени облучения оптическим излучением с длиной волны 470 нм.

Фиг.7. Кинетика затухания ОСЛ детекторов с предварительно заполненными глубокими ловушками в зависимости от времени оптической стимуляции. 1-0; 2-5; 3-10; 4-15 мин.

Фиг.8. Нормированные значения зависимости выхода ТЛ, запасенной в дозиметрическом пике при 450К от дозы предварительного облучения и времени последующей фотостимуляции. 1-0,5; 2-1; 3-1,5 Гр.

Формула изобретения

Способ термолучевой подготовки к экспозициям термолюминесцентных детекторов ионизирующих излучений на основе оксида алюминия, включающий термообработку, отличающийся тем, что перед термообработкой детекторы облучают при комнатной температуре оптическим излучением мощностью 1-15 мВт в диапазоне длин волн 420-570 нм в течение 5-35 мин, после чего их нагревают до температуры 300-320°C и выдерживают при этой температуре 1-2 мин.

10

15

20

25

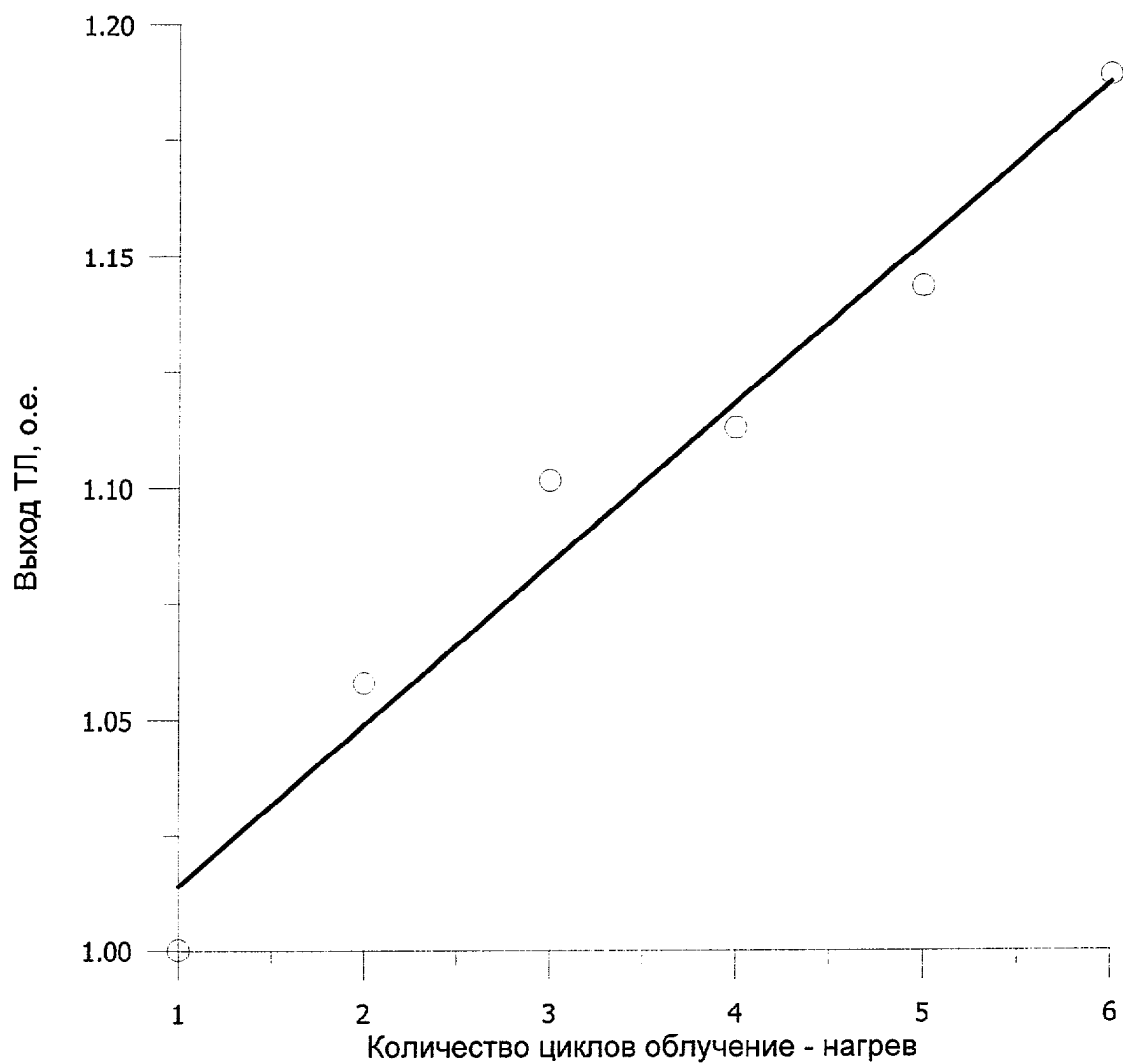
30

35

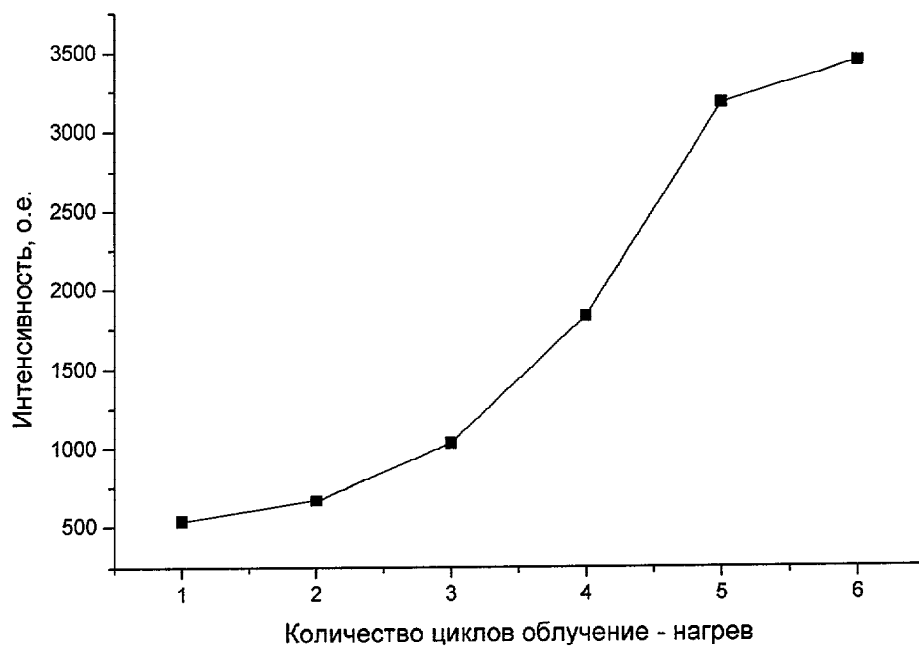
40

45

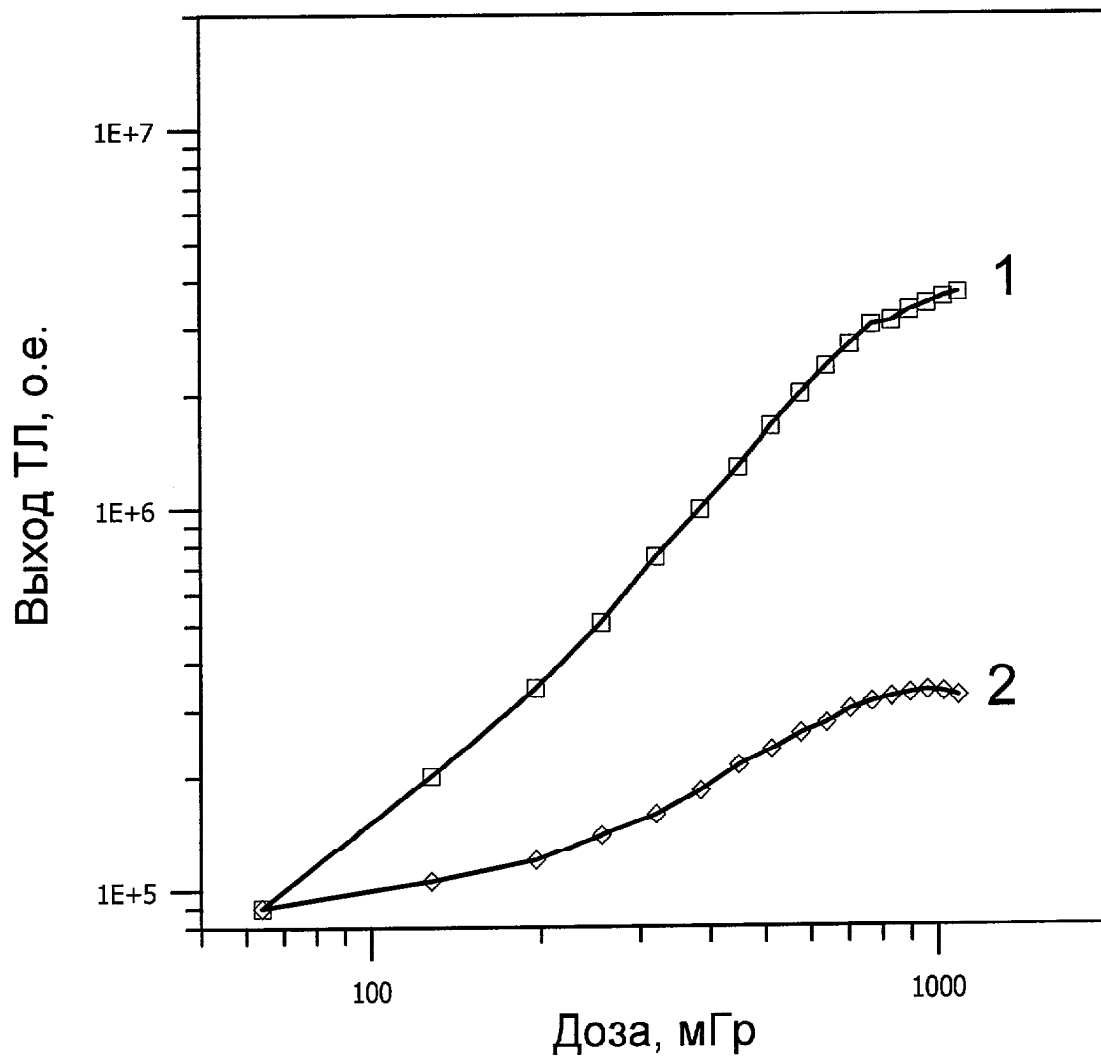
50



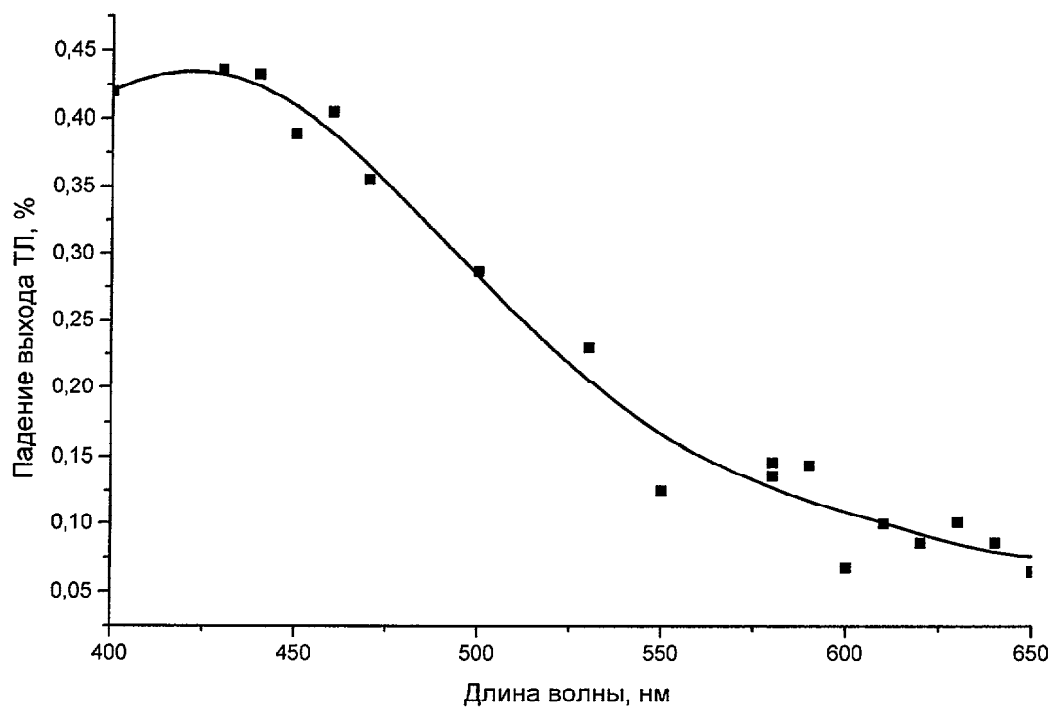
Фиг. 2



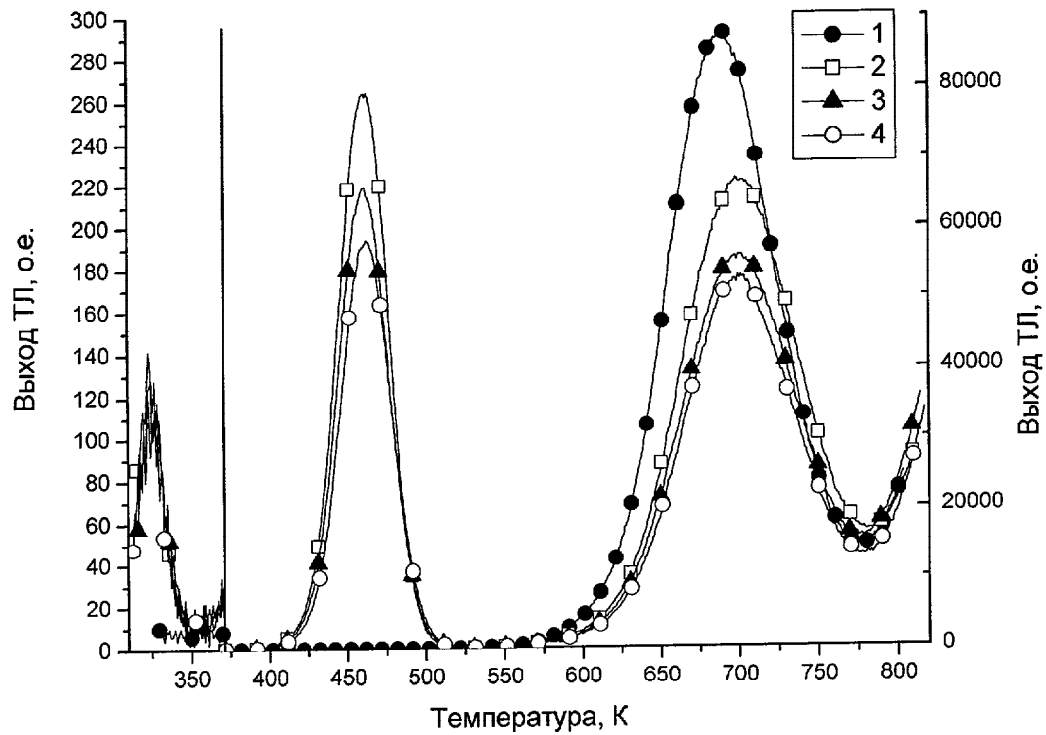
Фиг. 3



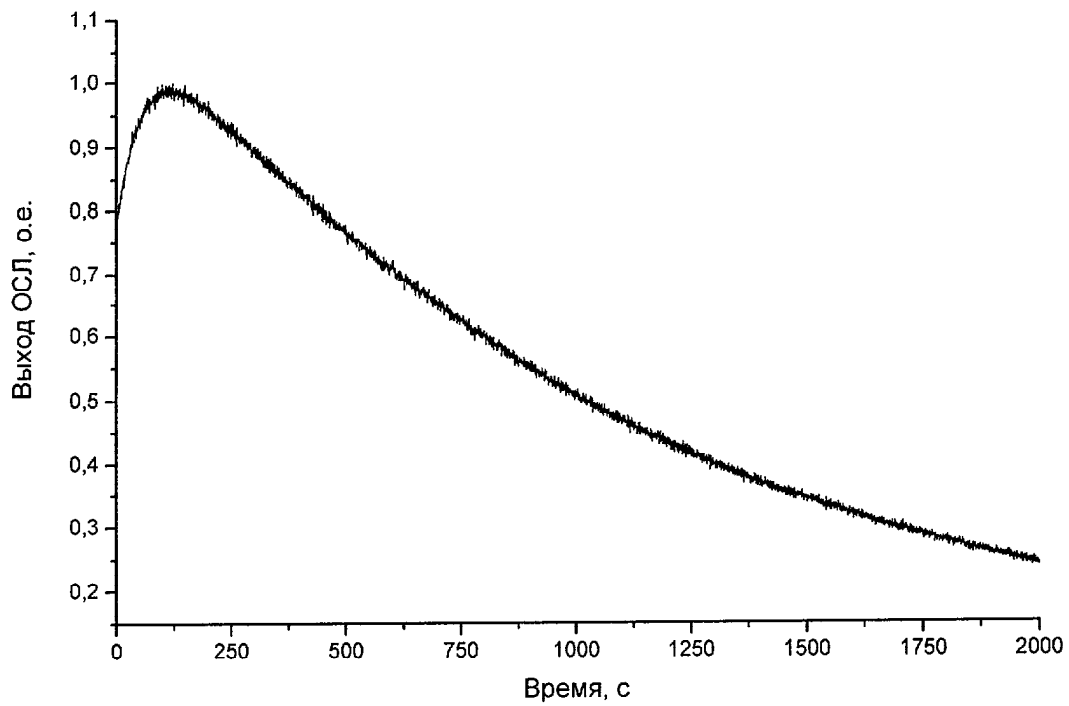
Фиг. 4



Фиг. 5



Фиг. 6



Фиг. 7

